

Attorney Docket No.: Q64324  
**PATENT APPLICATION**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re application of

Masayuki MISHIMA

Appln. No.: 09/845,356

Group Art Unit: 2871

Confirmation No.: 2603

Examiner: Not Yet Assigned

Filed: May 1, 2001

For: LIGHT-EMITTING DEVICE

**SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Sir:

Submitted herewith is a certified copy of the priority document on which a claim to  
priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to  
acknowledge receipt of said priority document.

Respectfully submitted,

Mark Boland  
Registration No. 32,197

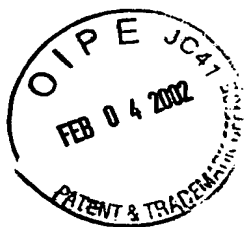
SUGHRUE MION, PLLC  
2100 Pennsylvania Avenue, N.W.  
Washington, D.C. 20037-3213  
Telephone: (202) 293-7060  
Facsimile: (202) 293-7860

Enclosure: Japan 2000-133530

Date: February 4, 2002

#3  
RECEIVED  
FEB - 6 2002  
TECHNOLOGY CENTER 2800

RECEIVED  
FEB 13 2002  
TC 1700



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 5月 2日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-133530

出 願 人

Applicant(s):

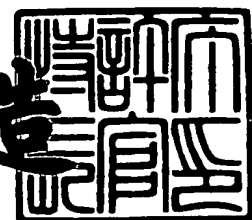
富士写真フイルム株式会社

RECEIVED  
FEB 13 2002  
TC 1700

2001年 9月10日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3083195

【書類名】 特許願

【整理番号】 P-34868

【提出日】 平成12年 5月 2日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/14

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

【氏名】 三島 雅之

【特許出願人】

【識別番号】 000005201

【氏名又は名称】 富士写真フイルム株式会社

【代理人】

【識別番号】 100105647

【弁理士】

【氏名又は名称】 小栗 昌平

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100105474

【弁理士】

【氏名又は名称】 本多 弘徳

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100108589

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 利光

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100115107

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 猛

【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

【識別番号】 100090343

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗宇 百合子

【電話番号】 03-5561-3990

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 092740

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0003489

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 支持基板上に設けた少なくとも陽極、発光層を含む有機化合物層および陰極からなる発光素子において、相異なる二種以上の発光材を該発光層に含み、かつ該発光材の少なくとも一種がオルトメタル化錯体であることを特徴とする発光素子。

【請求項 2】 相異なる二種以上の発光材が同一の発光層に混合して含まれることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 3】 相異なる二種以上の発光材がそれぞれ相異なる発光層に含まれることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 4】 白色発光であることを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれかに記載の発光素子。

【請求項 5】 発光材が相異なる三種であり、かつそれぞれの発光波長ピークが 4 0 0 ~ 5 0 0 n m の青色発光材、5 0 0 ~ 5 7 0 n m の緑色発光材、5 8 0 ~ 6 7 0 n m の赤色発光材であることを特徴とする請求項 1 乃至 4 のいずれかに記載の発光素子。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明はフルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源やプリンター等の光源アレイ等に有効に利用できる発光素子に関するものであり、さらに詳しくは、発光効率および発光輝度に優れた発光素子に関するものである。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

有機物質を使用した有機発光素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子や書き込み光源アレイとしての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般に有機発光素子は、発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極から電子が注入され

、陽極から正孔が注入される。この電子と正孔が発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導体から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

## 【0003】

従来の有機発光素子は、駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かったが、近年この点を解決する技術が種々報告されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する有機発光素子が知られている（アプライド フィジクス レターズ、51巻、913頁、1987年）。ここに記載の有機発光素子は電子輸送材料からなる電子輸送層と正孔輸送材料からなる正孔輸送層の積層二層構造を有し、従来の単層型素子に比べて発光特性が大幅に向上している。

## 【0004】

上記の有機発光素子は正孔輸送材料として低分子アミン化合物、電子輸送材料兼発光材料として8-キノリノールのAl錯体（Alq）を用いており、発光色は緑色である。その後、このような蒸着型有機発光素子は数多く報告されている（マクロモレキュラー シンポジウム、125巻、1頁、1997年記載の参考文献参照）。

## 【0005】

しかしながら、この有機発光素子は無機LED素子や、蛍光管に比べ非常に発光効率が低く大きな問題となっている。現在提案されている有機発光素子のほとんどは、有機化合物発光材の一重項励起子から得られる蛍光発光を利用したものである。単純な量子化学のメカニズムにおいては励起子状態において、蛍光発光が得られる一重項励起子と燐光発光が得られる三重項励起子の比は1対3であり、蛍光発光を利用している限りは励起子の25%しか有効活用できず発光効率の低いものとなる。それに対して三重項励起子から得られる燐光を利用できるようになれば、発光効率を向上できることになる。そのような考えのもとで近年イリジウムのフェニルピリジン錯体を用いた燐光発光素子が報告されている（アプライド フィジクス レター、75巻、4頁、1999年、ジャパニーズジャーナル オブ アプライド フィジクス、38巻、L1502頁、1999年）。これらの報告では従来の蛍光利用有機発光素子に対して、2～3倍の発光効率を報告

している。しかしながら、省エネルギーや耐久性向上の点でこれでもまだまだ低く、さらに一層の発光効率向上および輝度向上が強く求められている。

【0 0 0 6】

一方、バックライトや照明光源では高発光効率で高発光輝度である光源が強く望まれているが、現状では蛍光管以上のものは得られていない。蛍光管は水銀を含み環境問題が浮上しており、さらに柔軟性が無く設置場所に制限があるという問題がある。また寿命も10000時間足らずと短いものである。これら問題点を解決する目的で、安全で軽くかつ薄くできる有機発光素子が提案されているが、まだまだ発光効率、発光輝度の点で劣っており、この改良が強く望まれている。

【0 0 0 7】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、前記従来における問題を解決し、以下の目的を達成することを課題とする。すなわち、本発明は、フルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源や、プリンター等の光源アレイなどに有効に利用でき、発光効率および発光強度に優れた発光素子を提供することを目的とする。さらには、発光効率および発光輝度に優れた白色発光素子を提供することを目的とする。

【0 0 0 8】

【課題を解決するための手段】

本発明の上記課題は以下の手段により達成された。

(1) 支持基板上に設けた少なくとも陽極、発光層を含む有機化合物層および陰極からなる発光素子において、相異なる二種以上の発光材を該発光層に含み、かつ該発光材の少なくとも一種がオルトメタル化錯体であることを特徴とする発光素子。

(2) 相異なる二種以上の発光材が同一の発光層に混合して含まれることを特徴とする前記(1)記載の発光素子。

(3) 相異なる二種以上の発光材がそれぞれ相異なる発光層に含まれることを特徴とする前記(1)記載の発光素子。

(4) 白色発光であることを特徴とする前記(1)～(3)記載の発光素子。

(5) 発光材が相異なる三種であり、かつそれぞれの発光波長ピークが400～500nmの青色発光材、500～570nmの緑色発光材、580～670nmの赤色発光材であることを特徴とする前記(1)～(4)記載の発光素子。

【0009】

【発明の実施の形態】

以下に本発明を詳細に説明する。

本発明における発光素子は、支持基板上に設けた少なくとも陽極、発光層を含む有機化合物層、および陰極からなり、相異なる二種以上の発光材を発光層に含み、その発光材の少なくとも一種がオルトメタル化錯体である。

【0010】

本発明に用いられる発光材であるオルトメタル化錯体とは、例えば山本明夫著「有機金属化学－基礎と応用－」150頁、232頁、裳華房社(1982年発行)やH.Yersin著「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」71～77頁、135～146頁、Springer-Verlag社(1987年発行)等に記載されている化合物群の総称である。オルトメタル化錯体を形成する配位子としては種々のものがあり上記文献にも記載されている。例えば2-フェニルピリジン誘導体、7,8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体、2-フェニルキノリン誘導体等を挙げることができる。これらの誘導体は必要に応じて置換基を有しても良い。オルトメタル化錯体を形成する金属としては例えば、Ir、Pd、Pt等を挙げることができるが特に限定されることはない。本発明に用いられるオルトメタル化錯体は、オルトメタル化錯体を形成するのに必要な配位子以外に他の配位子(例えば、ジアルキルアミン、ジアリールアミンなどのアミン類等)を有しても良い。

【0011】

本発明においては、相異なる二種以上の発光材を発光層に含むことを特徴とし、上記オルトメタル化錯体の少なくとも一種を発光層に含む。

他の発光材は、オルトメタル化錯体であってもなくても良く、例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチ



リルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、ピラン誘導体、ピレン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物が挙げることができ、特にこれらに限定されることはない。

#### 【0012】

本発明においては、上記オルトメタル化錯体を少なくとも一種含む相異なる二種もしくは三種以上の発光材を用いることにより、任意の色の発光素子を得ることが得きる。中でも発光材を適切に選ぶことにより、高発光効率および高発光輝度である白色発光体を得ることができる。例えば、青色発光材と橙色発光材の組み合わせにより白色発光素子を得ることができる。なかでも、相異なる三種以上の発光材を適切に選ぶことが好ましく、それぞれの発光波長400～500nmの青色発光材、500～570nmの緑色発光材、580～670nmの赤色発光材である発光材を選ぶことが好ましい。これらを有機化合物層の発光層に含ませることにより白色発光素子を得ることができる。これらの発光材は上記例より適切に選ぶことができる。例えば青色発光材としてスチリルベンゼン誘導体、緑色発光材としてオルトメタル化錯体であるトリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体、赤色発光材としてはDCM等のピラン誘導体を選ぶことにより高発光効率および高発光輝度を示す白色発光素子を得ることができる。

#### 【0013】

本発明に用いられる発光素子の構成は支持基板上に設けた少なくとも陽極、少なくとも発光層を含む有機化合物層、および陰極からなっており、有機化合物層は発光層を含んでいればその構成は特に限定されることはない。

例えば有機化合物層として、発光層のみの一層、正孔輸送層／発光層または発

光層／電子輸送層の二層構成、正孔輸送層／発光層／電子輸送層の三層構成であっても良く、また正孔注入層、正孔ブロック層、電子注入層を設けても良い。また発光層としては一層だけでも良く、また第一発光層、第二発光層、第三発光層等に発光層を分割しても良い。

本発明においては発光層に相異なる二種以上の発光材を含むが、同一発光層に混合して含ませても良く、また発光層を分割しそれぞれ別々の発光層に含ませても良い。

また発光層としてはホスト材に発光材を分散させたドープ型発光層でも、発光材が主成分である非ドープ型発光層であっても良い。

#### 【 0 0 1 4 】

以下に本発明における発光素子の構成および作成方法について詳細に説明する。

本発明に用いられる支持基板は透明であっても不透明であっても良い。透明な支持基板を用いた場合には、構成としては例えば透明支持基板／陽極／有機化合物層／陰極構成を挙げることができる。また、不透明な支持基板を用いた場合には、例えば不透明支持基板（陰極と併用してもよい）／陰極／有機化合物層／陽極（透明）構成を挙げることができる。いずれの場合にも、透明な陽極側から発光を取り出すことができればよい。以下に透明な支持基板を用いた場合について詳細に説明する。

#### 【 0 0 1 5 】

透明な支持基板としては例えばガラス、ポリカーボネートシート、ポリエーテルスルホンシート、ポリエステルシート、ポリ（クロロトリフルオロエチレン）シート等を挙げることができる。またこれらに窒化珪素、酸化珪素等による保護膜を形成したものをを用いることもできる。

#### 【 0 0 1 6 】

この透明な支持基板上に陽極を設ける。本発明に用いられる陽極は有機化合物層に正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、有機導電性化合物、またはこれらの混合物を好適に用いることができる。好ましくは仕事関数が4.0 eV以上の材料である。具体例としては、酸化錫、酸化亜鉛、酸化インジウム

、酸化インジウム錫（ITO）等の半導性金属酸化物、金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられる。

## 【0017】

陽極の設置方法は特に限定されることはなく、例えば、印刷方式、コーティング方式等の湿式方式や、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方式、CVD、プラズマCVD法等の化学的方式を挙げることができる。例えば、ITO陽極を設置する場合には、スパッタ法が用いられ、直流法、RF法いずれも採用することができる。また有機導電性化合物を設置する場合には湿式製膜法が好ましく用いられる。

以上の如くにして得られる陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～50μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～20μmである。

この陽極の抵抗は $10^3\Omega/\square$ 以下であることが好ましく、さらに好ましくは $10^2\Omega/\square$ 以下である。また陽極シートの透明性は主に陽極側から蛍光を取り出すため透過度60%以上であることが好ましく、さらに好ましくは70%以上である。

## 【0018】

この陽極上に発光層を含む一層以上の有機化合物層を設ける。有機化合物層の膜厚は、全体で0.05μm以上0.3μm以下であることが好ましく、さらに好ましくは0.07μm以上0.2μm以下である。これよりも薄いと電圧印加時に絶縁破壊が起こりやすくなり好ましくない。また、これよりも厚いと発光に高電圧が必要となり好ましくない。

本発明の有機化合物層は塗布法等による湿式法、蒸着法やスパッタ法等による乾式法いずれも好ましくとることができる。

湿式法を用いる場合にはポリビニルカルバゾール誘導体や、ポリ（pフェニレ

ンビニレン)等の正孔輸送性ポリマーまたは電子輸送性ポリマーに発光材や正孔輸送材、電子輸送材を溶媒中で混合溶解し、それを塗布乾燥することにより得ることができる。またポリカーボネート樹脂やポリスチレン樹脂等の電氣的に不活性なポリマーバインダー中に発光材や正孔輸送材、電子輸送材を溶媒中で混合溶解し、それを塗布乾燥することにより得ることができる。また前記各層を順次塗布することにより多層化する事も可能である。

乾式法を用いる場合には、順次各層を蒸着法やスパッタ法により設けることにより有機化合物層を得ることができる。

#### 【0019】

正孔輸送層または正孔注入層に用いられる正孔注入材、正孔輸送材としては、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているもので有れば限定されることはなく、例えば以下の材料を挙げることができる。カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。これらは一種もしくは二種以上を混合して用いることができる。

#### 【0020】

本発明の発光層に用いられる発光材は前記のとおりである。また該発光層には発光材に励起子エネルギー移動させるためのホスト材が共用されても良くホスト材としては特に限定されることはない。例えばカルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体

、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物等が挙げられる。これらは一種もしくは二種以上を混合して用いることができる。

## 【0021】

電子輸送層または電子注入層に用いられる電子注入材、電子輸送材としては、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているもので有れば限定されることはなく、例えば以下の材料を挙げることができる。トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等の高分子化合物を挙げることができこれらは一種もしくは二種以上を混合して用いることができる。

## 【0022】

本発明においてはさらにこの上に陰極を設ける。

本発明に用いられる陰極は有機化合物層に電子を供給するものである。陰極に用いられる材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（たとえば、Li、Na、K等）、またはそのフッ化物、アルカリ土類金属（たとえばMg、Ca等）、またはそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-銀合金、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4.5 eV以下の材料である。より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-銀合金が挙げられる。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmである。

## 【0023】

陰極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばスパッタリング法、真空蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することも可能である。

また、本発明においては、発光層と陰極の間に電子注入層を設けてもよく、例えば、フッ化リチウム、フッ化セシウム等の金属ハロゲン化物や酸化アルミ等の金属酸化物を挙げることができる。

## 【0024】

また、本発明においては陰極の外側に酸化珪素、二酸化珪素、酸化ゲルマニウム、二酸化ゲルマニウム等の保護層を設けることができる。保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであれば良い。

保護層の形成方法については特に限定はなく、たとえば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子セシエピタキシ法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法を適用できる。

## 【0025】

不透明な支持基板を用いる場合には、支持基板としては例えばアルミ、鉄、ステンレス、ニッケル等の金属や合金の板、不透明な各種プラスチック基板、セラミック基板等を挙げることができ、金属基板を用いた場合には陰極と併用することも可能である。この上に前記の陰極、有機化合物層、陽極を設けて本発明における発光素子を得ることができる。

また、前記と同様に陰極と発光層の間に電子注入層を設けることもできる。また陽極の外側に前記保護層を設けてもよい。

## 【0026】

以上の如くにして得られた発光素子は、外部との水分や酸素の遮断の目的で封止板、封止容器により、封止剤を用いて封止する事ができる。

封止板、封止容器に用いられる材質としては、ガラス、ステンレス、アルミ等の金属、ポリエステル、ポリカーボネート等のプラスチックやセラミック等を用いることができる。封止材としては紫外線硬化樹脂、熱硬化樹脂、二液型硬化樹脂いずれも用いることができる。

## 【0027】

さらに本発明においては、封止容器と発光素子の間の空間に水分吸収剤または不活性液体を設けることができる。水分吸収剤としては、特に限定されることはないが例えば酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化リン、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシーブ、ゼオライト、酸化マグネシウム等を挙げることができる。不活性液体としては、特に限定されることはないが例えば、パラフィン類、流動パラフィン類、パーフルオロアルカンやパーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等のフッ素系溶剤、塩素系溶剤、シリコンオイル類を挙げることができる。

## 【0028】

以上の如くにして、本発明における相異なる二種以上の発光材を発光層に含み、その発光材の少なくとも一種がオルトメタル化錯体である発光素子を作製する

ことができる。該発光素子は任意の色相の発光を高発光効率および高発光輝度で達成することができる。

【 0 0 2 9 】

【実施例】

以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

【 0 0 3 0 】

実施例 1

2 5 m m × 2 5 m m × 0 . 5 m m のガラス支持基板上に直流電源を用い、スパッタ法にてインジウム錫酸化物 ( I T O 、 インジウム / 錫 = 9 5 / 5 モル比 ) の陽極を形成した ( 厚み 0 . 2 μ m ) 。 この陽極の表面抵抗は 1 0 Ω / □ であった。

これにポリビニルカルバゾール / 1 , 1 , 4 , 4 , - テトラフェニルブタジエン ( 青発光材 ) / トリス ( 2 - フェニルピリジン ) イリジウム錯体 ( 緑発光材、オルトメタル化錯体 ) / 4 - ( ジシアノメチレン ) - 2 - メチル - 6 - ( 4 - ジメチルアミノスチリル ) - 4 H - ピラン ( 赤発光材 ) / 2 - ( 4 - ビフェニル ) - 5 - ( 4 - t - ブチルフェニル ) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール ( 電子輸送材 ) = 2 0 0 / 1 / 5 / 1 / 5 0 重量比を溶解したジクロロエタン溶液をスピコーターで塗布し、 0 . 1 1 μ m の発光層を得た。

この有機化合物層の上にパターニングしたマスク ( 発光面積が 5 m m × 5 m m となるマスク ) を設置し、蒸着装置内でマグネシウム : 銀 = 1 0 : 1 ( モル比 ) を 0 . 2 5 μ m 蒸着し、さらに銀を 0 . 3 μ m 蒸着して陰極を設けた。陽極、陰極よりそれぞれアルミニウムのリード線を出して発光素子を作成した。

該素子を窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止容器で紫外線硬化型接着剤 ( 長瀬チバ製、X N R 5 4 9 3 ) を用いて封止して本発明における発光素子を作製した。以上の如くにして本発明における発光素子を得た。

【 0 0 3 1 】

該発光素子を用いて、以下の方法で評価した。



東洋テクニカ製ソースメジャーユニット 2 4 0 0 型を用いて、直流電圧を有機 E L 素子に印加し発光させた。その時の最高輝度を  $L_{\max}$ 、 $L_{\max}$  が得られた時の電圧を  $V_{\max}$  とした。さらに  $2000 \text{ Cd/m}^2$  時の発光効率を  $P (\text{Cd/A})$  として表 1 に示した。また発光波長を浜松ホトニクス製スペクトルアナライザー PMA-11 を用いて測定し、表 1 に示した。

## 【 0 0 3 2 】

## 実施例 2

実施例 1 において、赤発光材として 4 - (ジシアノメチレン) - 2 - メチル - 6 - (4 - ジメチルアミノスチリル) - 4 H - ピラン (赤発光材) のかわりに、ビス (2 - フェニルキノリン) アセチルアセトナートイリジウム錯体を用いる以外は実施例 1 と同じ方法で本発明の発光素子を作製し、実施例 1 と同じ方法で評価した。その結果を表 1 に示した。

## 【 0 0 3 3 】

## 比較例 1

実施例 1 において、緑発光材としてとしてトリス (2 - フェニルピリジン) イリジウム錯体のかわりにクマリン 6 を用いる以外は実施例 1 と同じ方法で比較の発光素子を作製し、実施例 1 と同じ方法で評価した。その結果を表 1 に示した。

## 【 0 0 3 4 】

## 実施例 3

$25 \text{ mm} \times 25 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$  のガラス支持基板上に直流電源を用い、スパッタ法にてインジウム錫酸化物 (ITO、インジウム/錫 = 95/5 モル比) の陽極を形成した (厚み  $0.2 \mu\text{m}$ )。この陽極の表面抵抗は  $10 \Omega/\square$  であった。

この陽極上に正孔輸送層として、N, N' - ジナフチル - N, N' - ジフェニルベンジジンを真空蒸着法にて  $0.04 \mu\text{m}$  設けた。

この上に青発光材である 1 - [3, 5 - ジ (1 - ピレニル) - フェニル] - ピレンを  $1 \text{ nm/秒}$  の速度で共蒸着して  $0.024 \mu\text{m}$  の第一発光層を得た。

その上にホスト材 4, 4' - N, N' - ジカルバゾールビフェニル、緑発光材としてトリス (2 - フェニルピリジン) イリジウム錯体をそれぞれ  $3 \text{ nm/秒}$ 、

0.5 nm/秒の速度で共蒸着して0.024  $\mu$ mの第二発光層を得た。

さらにその上にホスト材として4, 4'-N, N'-ジカルバゾールビフェニル、赤発光材としてルブレンをそれぞれ3 nm/秒、0.1 nm/秒の速度で共蒸着して0.024  $\mu$ mの第三発光層を得た。

さらにその上に電子輸送材として2, 2', 2''-(1, 3, 5-ベンゼントリイル)トリス[3-(2-メチルフェニル)-3H-イミダゾ[4, 5-b]ピリジン]を1 nm/秒の速度で蒸着して0.024  $\mu$ mの電子輸送層を設けた。

この有機化合物層の上にパターニングしたマスク（発光面積が5 mm×5 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀＝10：1（モル比）を0.25  $\mu$ m蒸着し、さらに銀を0.3  $\mu$ m蒸着して陰極を設けた。陽極、陰極よりそれぞれアルミニウムのリード線を出して発光素子を作成した。

該素子を窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止容器で紫外線硬化型接着剤（長瀬チバ製、XNR5493）を用いて封止して本発明における発光素子を作製した。以上の如くにして本発明における発光素子を得た。

これを実施例1と同じ方法で評価し、表1に示した。

#### 【0035】

##### 実施例4

実施例3において、赤発光材としてルブレン（赤発光材）のかわりに、ビス（2-フェニルキノリン）アセチルアセトナートイリジウム錯体を用いる以外は実施例1と同じ方法で本発明の発光素子を作製し、実施例1と同じ方法で評価した。その結果を表1に示した。

#### 【0036】

##### 比較例2

実施例2において、緑発光材としてとしてトリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体のかわりにクマリン6を用いる以外は実施例1と同じ方法で比較の発光素子を作製し、実施例1と同じ方法で評価した。その結果を表1に示した。

#### 【0037】

【表 1】

	L <sub>max</sub> (Cd/m <sup>2</sup> )	V <sub>max</sub> (V)	P (Cd/A)	発光波長λ <sub>0-λ</sub> (nm)
実施例 1	23000	11	18	450 , 515 , 604
実施例 2	38000	10	25	450 , 515 , 599
比較例 1	2400	14	1.5	450 , 520 , 603
実施例 3	56000	11	38	482 , 515 , 604
実施例 4	78000	10	45	485 , 515 , 600
比較例 2	5200	14	2.5	482 , 516 , 605

## 【0038】

上記の表 1 の結果から下記のことが明らかである。即ち、実施例 1 ～ 2 では比較例 1 に比べて、より低電圧駆動で高輝度発光時の発光効率（P）が 10 倍以上も高く、且つ最高輝度（L<sub>max</sub>）も約 10 倍高い。

また、同様に実施例 3 ～ 4 では比較例 2 に比べて、より低電圧駆動で高輝度発光時の発光効率が 15 倍以上も高く、且つ最高輝度が 10 倍以上高いことがわかる。

## 【0039】

## 【発明の効果】

支持基板上に設けた少なくとも陽極、発光層を含む有機化合物層および陰極からなる発光素子において、相異なる二種以上の発光材を発光層に含み、該発光材の少なくとも一種がオルトメタル化錯体である発光素子は、発光効率および発光強度に優れたものである。また、白色光源として有用なものである。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 フルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源やプリンター等の光源アレイなどに有効に利用でき、発光効率および発光輝度に優れている。特に白色光源として発光効率および発光輝度に優れた発光素子を提供する。

【解決手段】 支持基板上に設けた少なくとも陽極、発光層を含む有機化合物層、陰極からなる発光素子において、相異なる二種以上の発光材を発光層に含み、かつ該発光材の少なくとも一種がオルトメタル化錯体である。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005201]

1. 変更年月日	1990年 8月14日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県南足柄市中沼210番地
氏 名	富士写真フイルム株式会社